(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 15. Juli 2004 (15.07.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer $WO\ 2004/059770\ A3$

- (51) Internationale Patentklassifikation7: H01M 8/10, 4/92
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/014839
- (22) Internationales Anmeldedatum:

23. Dezember 2003 (23.12.2003)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

- (30) Angaben zur Priorität: 02029084.7 30. Dezember 2002 (30.12.2002) FF
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): UMICORE AG & CO. KG [DE/DE]; Rodenbacher Chaussee 4, 63457 Hanau-Wolfgang (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): RUTH, Karsten [DE/DE]; Streuweg 3, 63755 Alzenau (DE). SCHLEUNUNG, Andreas [DE/DE]; Danziger Strasse 4, 63762

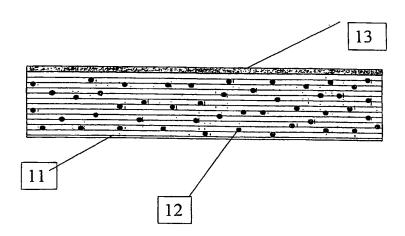
Grossostheim (DE). STARZ, Karl-Anton [DE/DE]; Adolf-Reichwein-Strasse 12, 63517 Rodenbach (DE). LOPEZ, Marco [DE/DE]; Lupinenweg 18, 60433 Frankfurt (DE).

- (74) Anwalt: VOSSIUS & PARTNER; Siebertstr. 4, 81675 München (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO Patent (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: GAS DIFFUSER SUBSTRATE CONTAINING CATALYSTS FOR FUEL CELLS, IN ADDITION TO A METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: KATALYSATORHALTIGES GASVERTEILERSUBSTRAT FÜR BRENNSTOFFZELLEN SOWIE VERFAHREN ZU DESSEN HERSTELLUNG



(57) Abstract: The invention relates to a gas diffuser substrate containing catalysts for fuel cells, especially low temperature fuel cells, such as PEMFC and DMFC. The gas diffuser substrate is used on the anode side of the fuel cell and contains catalyst components which result in the removal of carbon monoxide (in the PEMFC) and respectively the oxidation of methanol (in the DMFC). Said catalyst components are produced directly in porous substrate material by thermal treatment of suitable precursor compounds and are homogeneously distributed over the total volume of the gas diffuser substrate. As a result, the catalyst components have particularly high activity. The invention also relates to a method for the production of a gas diffuser substrate containing catalysts. The gas diffuser substrates used in membrane electrode units (MEEs) for low temperature fuel cells, especially for PEM-fuel cells, are operated with reformate gas containing CO. Said substrates are also used in direct-methanol-fuel cells (DMFC).

WO 2004/059770



TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der f\(\tilde{u}\) ir Änderungen der Anspr\(\tilde{u}\) che geltenden
 Frist; Ver\(\tilde{o}\) ffentlichung wird wiederholt, falls \(\tilde{A}\) nderungen
 eintreffen

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 19. August 2004

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein katalysatorhaltiges Gasverteilersubstrat für Brennstoffzellen, insbesondere Niedertemperatur-Brennstoffzellen, wie PEMFC und DMFC. Das Gasverteilersubstrat wird auf der Anodenseite der Brennstoffzelle eingesetzt und enthält Katalysatorkomponenten, die eine Entfernung von Kohlenmonoxid (in der PEMFC) beziehungsweise eine Oxidation von Methanol (in der DMFC) bewirken. Die Katalysatorkomponenten werden aus geeigneten Precursorverbindungen direkt im porösen Substratmaterial durch Temperaturbehandlung erzeugt und sind gleichmässig über das gesamte Volumen des Gasverteilersubstrates verteilt. Die Katalysatorkomponenten weisen dadurch eine besonders hohe Aktivität auf. Weiterhin wird ein Verfahren zur Herstellung eines katalysatorhaltiges Gasverteilersubstrates beschrieben. Die Gasverteilersubstrat finden Verwendung in Membran-Elektroden-Einheiten (MEEs) für Niedertemperatur-Brennstoffzellen, insbesondere für PEM-Brennstoffzellen, die mit CO-haltigem Reformatgas betrieben werden. Sie können weiterhin in Direkt-Methanol-Brennstoffzellen (DMFC) eingesetzt werden.



ternational Application No

T/EP 03/14839 A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 H01M8/10 H01M H01M4/92 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 H01M Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, PAJ C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category ° Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to daim No. X WO 00/79628 A (HOOGERS GREGOR ; BALL SARAH 1,2,4-7, CAROLINE (GB); HARDS GRAHAM ALAN (GB);) 17-19 28 December 2000 (2000-12-28) page 3, line 27 - page 4, line 15; claims 1-7,9,11-13; examples; table 1 X EP 0 606 051 A (PERMELEC SPA NORA 1,2,4,6 ; PERMELEC ELECTRODE LTD (JP)) 13 July 1994 (1994-07-13) claims 1,2,5,13,14,16,17; examples US 6 361 896 B1 (ROHLAND BERND ET AL) X 1,2,4,6, 26 March 2002 (2002-03-26) 7,17,19 column 3, line 13 - column 3, line 43; figure 1 column 4, line 12 - column 4, line 25; claims 1,2 -/--Further documents are listed in the continuation of box C. X Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international Invention filing date "X" document of particular relevance; the claimed invention *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) cannot be considered novel or cannot be considered to layolve an inventive step when the document is taken alone 'Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means ments, such combination being obvious to a person skilled document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed in the art. "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 23 June 2004 01/07/2004 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016 Wiedemann, E



ternational Application No

On the Considered TO BE RELEVANT		
Cliation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages		Relevant to claim No.
DE 197 57 320 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH) 1 July 1999 (1999-07-01) column 2, line 43 - column 2, line 62; claims 1-6		1-4,6
US 4 828 941 A (STERZEL HANS-JOSEF) 9 May 1989 (1989-05-09) column 9, line 20 - column 10, line 67; claims 1,2,6,7; figure		1,2,4-6, 18,19
JP 09 129243 A (TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB INC) 16 May 1997 (1997-05-16) cited in the application abstract		1-19
EP 1 150 370 A (DMC2 DEGUSSA METALS CATALYSTS) 31 October 2001 (2001-10-31) claims		1–19
	US 4 828 941 A (STERZEL HANS-JOSEF) 9 May 1989 (1989-05-09) column 9, line 20 - column 10, line 67; claims 1,2,6,7; figure JP 09 129243 A (TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB INC) 16 May 1997 (1997-05-16) cited in the application abstract EP 1 150 370 A (DMC2 DEGUSSA METALS CATALYSTS) 31 October 2001 (2001-10-31)	Citation of document, with Indication, where appropriate, of the relevant passages DE 197 57 320 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH) 1 July 1999 (1999-07-01) column 2, line 43 - column 2, line 62; claims 1-6 US 4 828 941 A (STERZEL HANS-JOSEF) 9 May 1989 (1989-05-09) column 9, line 20 - column 10, line 67; claims 1,2,6,7; figure JP 09 129243 A (TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB INC) 16 May 1997 (1997-05-16) cited in the application abstract EP 1 150 370 A (DMC2 DEGUSSA METALS CATALYSTS) 31 October 2001 (2001-10-31)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

ernational Application No FEP 03/14839

						. 0 1 / []	03/ 14633
	atent document d in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
WO	0079628	Α	28-12-2000	CA	2374238	A1	28-12-2000
				DE	60006818		08-01-2004
				EP	1192681		03-01-2004
				WO	0079628	A1	28-12-2000
				JP	2003502827	T	21-01-2003
ΕP	0606051	Α	13-07-1994	JP	3142410	B2	07-03-2001
				JP	6235083	Α	23-08-1994
				JP	3236686	B2	10-12-2001
				JP	6192873		12-07-1994
				CA	2111882		26-06-1994
				EP	0606051		13-07-1994
				FI	935774		26-06-1994
				NO	934754	Α	27-06-1994
US	6361896	B1	26-03-2002	DE	19615562		09-10-1997
				DE	59710284		17-07-2003
				MO	9740542		30-10-1997
				EP	0958629		24-11-1999
				JP	2001502105	T	13-02-2001
DE 	19757320	A 	01-07-1999	DE	19757320	A1	01-07-1999
บร	4828941	Α	09-05-1989	DE	3618840		10-12-1987
				EP	0248394		09-12-1987
				JP	62296372	Α	23-12-1987
JP	09129243	Α	16-05-1997	NONE			~
ΕP	1150370	Α .	31-10-2001	EP	1150369	A1	31-10-2001
				EP	1150370		31-10-2001
				ΑT	244458	T	15-07-2003
				BR	0101612		27-11-2001
				CA	2345219		28-10-2001
				DE	50002722		07-08-2003
				DK	1150369		13-10-2003
				ES	2197034		01-01-2004
				JP	2002117865		19-04-2002
				US	2002041992	A 1	11-04-2002

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 H01M8/10 H01M4/92

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchlerter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 H01M HO1M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Dalenbank (Name der Dalenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 00/79628 A (HOOGERS GREGOR ;BALL SARAH CAROLINE (GB); HARDS GRAHAM ALAN (GB);) 28. Dezember 2000 (2000-12-28) Seite 3, Zeile 27 - Seite 4, Zeile 15; Ansprüche 1-7,9,11-13; Beispiele; Tabelle	1,2,4-7, 17-19
X	EP 0 606 051 A (PERMELEC SPA NORA; PERMELEC ELECTRODE LTD (JP)) 13. Juli 1994 (1994-07-13) Ansprüche 1,2,5,13,14,16,17; Beispiele	1,2,4,6
	US 6 361 896 B1 (ROHLAND BERND ET AL) 26. März 2002 (2002-03-26) Spalte 3, Zeile 13 - Spalte 3, Zeile 43; Abbildung 1 Spalte 4, Zeile 12 - Spalte 4, Zeile 25; Ansprüche 1,2	1,2,4,6, 7,17,19

Y Weitere Veröffentlichungen eind des Facture	_/
X Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie
Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen: A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist E* älleres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werder soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführ!) O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	erfinderischer Tältgkeil beruhend befrachtet werden 'Y' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindur kann nicht als auf erfinderischer Tältgkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
23. Juni 2004	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 01/07/2004
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentami, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevolfmächtigter Bedlensteter
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	· Wiedemann, E
omblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Januar 2004)	!

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

hternationales Aktenzeichen
T/EP 03/14839

		03/14839
C.(Fortsetz Kategorie ^o	rung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
rancyone	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 197 57 320 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH) 1. Juli 1999 (1999-07-01) Spalte 2, Zeile 43 - Spalte 2, Zeile 62; Ansprüche 1-6	1-4,6
X	US 4 828 941 A (STERZEL HANS-JOSEF) 9. Mai 1989 (1989-05-09) Spalte 9, Zeile 20 - Spalte 10, Zeile 67; Ansprüche 1,2,6,7; Abbildung	1,2,4-6, 18,19
A .	JP 09 129243 A (TOYOTA CENTRAL RES &DEV LAB INC) 16. Mai 1997 (1997–05–16) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung	1-19
A	EP 1 150 370 A (DMC2 DEGUSSA METALS CATALYSTS) 31. Oktober 2001 (2001-10-31) Ansprüche	1-19
		·
Ì	·	
ļ		
1		
	•	
•		

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffer

en, die zur selben Patentfamilie gehören

emailonales Aktenzeichen
T/EP 03/14839

						, =
Im Recherchenbericht ngeführtes Patentdokum	ent	Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 0079628	A .	28-12-2000	CA DE EP WO JP	2374238 60006818 1192681 0079628 2003502827	D1 A1 A1	28-12-2000 08-01-2004 03-04-2002 28-12-2000 21-01-2003
EP 0606051	A	13-07-1994	JP JP JP CA EP FI NO	3142410 6235083 3236686 6192873 2111882 0606051 935774 934754	A B2 A A1 A1 A	07-03-2001 23-08-1994 10-12-2001 12-07-1994 26-06-1994 13-07-1994 26-06-1994 27-06-1994
US 6361896	B1	26-03-2002	DE DE WO EP JP	19615562 59710284 9740542 0958629 2001502105	D1 A1 A1	09-10-1997 17-07-2003 30-10-1997 24-11-1999 13-02-2001
DE 19757320	Α	01-07-1999	DE	19757320		01-07-1999
US 4828941	A	09-05-1989	DE EP JP	3618840 0248394 62296372	A2	10-12-1987 09-12-1987 23-12-1987
JP 09129243	A	16-05-1997	KEIN	VE		
EP 1150370	A	31-10-2001	EP EP AT BR CA DE DK ES JP US	1150369 1150370 244458 0101612 2345219 50002722 1150369 2197034 2002117865 2002041992	A2 T A A1 D1 T3 T3	31-10-2001 31-10-2001 15-07-2003 27-11-2001 28-10-2001 07-08-2003 13-10-2003 01-01-2004 19-04-2002